

10/523088

DT05 Rec'd PCT/PTO 02 FEB 2005  
510.1118

**IN THE UNITED STATES PATENT & TRADEMARK OFFICE**

Re: Application of: Thomas POSCHMANN  
Serial No.: To Be Assigned  
Filed: Herewith as national phase of International Patent  
Application PCT/DE2003/002568, filed July 31, 2003  
For: MEMBRANE MODULE FOR THE SEPARATION FOR  
THE SEPARATION OF HYDROGEN AND METHOD  
FOR THE PRODUCTION THEREOF

Mail Stop: PCT  
Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

February 2, 2005

**LETTER RE: PRIORITY**

Sir:

Applicant hereby claims priority of German Application Serial No. DE 102 35 419.7,  
filed August 2, 2002 through International Patent Application Serial No. PCT/DE2003/002568,  
filed July 31, 2003.

Respectfully submitted,

DAVIDSON, DAVIDSON & KAPPEL, LLC

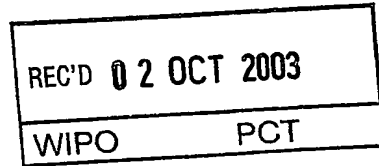
By



William C. Gehris, Reg. No. 38,156  
(signing for Thomas P. Canty, Reg. No. 44,586)

Davidson, Davidson & Kappel, LLC  
485 Seventh Avenue, 14th Floor  
New York, New York 10018  
(212) 736-1940

# BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND



P 14  
#3

## Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

**Aktenzeichen:**

102 35 419.7

**PRIORITY DOCUMENT**  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

**Anmeldetag:**

2. August 2002

**Anmelder/Inhaber:**

DaimlerChrysler AG, Stuttgart/DE

**Bezeichnung:**

Membranmodul zur Wasserstoffabtrennung und  
Verfahren zu dessen Herstellung

**IPC:**

C 01 B, B 01 D, H 01 M

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 8. Juli 2003  
Deutsches Patent- und Markenamt  
Der Präsident  
Im Auftrag

Faust

DaimlerChrysler AG

Quermann

31.07.02

Membranmodul zur Wasserstoffabtrennung  
und Verfahren zu dessen Herstellung

- 5 Die Erfindung betrifft ein Membranmodul zur Wasserstoffabtrennung und ein Verfahren zu dessen Herstellung.

Brennstoffzellensysteme, insbesondere solche für mobile Anwendungen, können durch Reformierung von Kohlenwasserstoffen wie zum Beispiel Methanol, Benzin oder Diesel mit Wasserstoff  
10 versorgt werden. Das in einem Reformierungsprozess entstandene Produktgas enthält neben Wasserstoff auch Kohlenmonoxid, Kohlendioxid und Wasserdampf. Insbesondere das Kohlenmonoxid muss für die Anwendung in der Brennstoffzelle entfernt werden,  
15 da dieses Gas als Katalysatorgift wirkt und zu einer Leistungseinbuße in der Brennstoffzelle führt.

Für die Wasserstoffabtrennung werden seit langem Membranen eingesetzt, die aus verschiedenen Materialien wie zum  
20 Beispiel Keramik, Glas, Polymer oder Metall bestehen können. Metallmembranen zeichnen sich durch eine hohe Selektivität für Wasserstoff und eine hohe Temperaturstabilität aus, haben aber vergleichsweise niedrige Permeationsraten.

- 25 Um eine gewünschte Permeationsrate zu erreichen, verwendet man eine Vielzahl von Membranzellen mit jeweils einer wasserstoffselektiven Membran, bei denen die einzelnen Membranen entweder nacheinander (seriell) oder nebeneinander (parallel) vom wasserstoffhaltigen Reformatgas angeströmt werden. Die

Membranzellen werden aufeinander gestapelt, um ein kompaktes Membranmodul zu bilden.

Membranmodule mit serieller Anströmung sind zum Beispiel in der US 5 498 278 und der US 5 645 626 beschrieben.

5

Ein Membranmodul mit paralleler Anströmung, gemäß den Oberbegriffen der Patentansprüche 1 und 14, ist aus der WO 01/70376 bekannt. Jede Membranzelle des Membranmoduls enthält mehrere aufeinander gestapelte ovale oder ungefähr rechteckige Rahmen als Träger für wasserstoffselektive ebene Membranen und für eine luftdurchlässige Abstandshalteschicht zur Ableitung von Permeatgas, und außerdem zwei Zufuhrrahmen, die Zufuhrräume für Reformatgas umgeben. Alle Rahmen haben gleiche äußere Abmessungen und bilden einen kompakten Stapel mit glatten Außenflächen. Die Rahmen enthalten miteinander fluchtende Löcher, die Kanäle zur gemeinsamen Zu- bzw. Ableitung der Prozessgase bilden, nämlich erstens zur Zuleitung von wasserstoffhaltigem Reformatgas aus einem vorgeschalteten Reformierungsprozess, zweitens zur Ableitung des Raffinatgases, das heißt des wasserstoffabgereicherten Reformatgases, und drittens zur Ableitung des Permeatgases, das heißt des durch die Membranen diffundierten Wasserstoffs.

So ein Membranmodul mit paralleler Anströmung ist sehr viel einfacher aufgebaut als ein Membranmodul mit serieller Anströmung, da keine Strukturen notwendig sind, die eine Umlenkung des Permeatgases von Zelle zu Zelle bewirken, wie bei serieller Gasführung erforderlich.

Dennoch ist der Fertigungsaufwand für das aus der WO 01/70376 bekannte Membranmodul beträchtlich, da die Umlenkung der Gase innerhalb der verschiedenen Rahmen erfolgt. Die Löcher in den Rahmen müssen mit hoher Genauigkeit hergestellt werden, da irgendwelche vorstehenden oder rückspringenden Rahmenteile oder Grate den Gasfluss behindern und die Herstellung von Gasdichtigkeit erschweren können. Noch schwerwiegender ist, dass fertigungsbedingte Ungenauigkeiten unterschiedliche

Teilströme durch die einzelnen Membranzellen zur Folge haben können, wodurch die Permeationsrate verschlechtert wird, wie später noch erläutert wird. Schließlich müssen die Rahmen auf ganzer Fläche gasdicht miteinander verbunden werden, um die

5 Kanäle und die Separationsräume zuverlässig leckfrei voneinander zu trennen.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Membranmodul zu schaffen, das mit möglichst geringem Aufwand und ohne Verwendung von Dichtungen hergestellt werden kann, wobei keine Gefahr von Leckagen der Gasströme besteht.

10

Diese Aufgabe wird bei einem gattungsgemäßen Membranmodul erfindungsgemäß dadurch gelöst, dass die zwei Membranrahmen jeder Membranzelle aufeinander zu gerichtete erhabene Ränder haben, mit denen sie sich mit Ausnahme mindestens einer Öffnung nach einer Seitenfläche des Stapels hin berühren, dass der Zufuhrrahmen so ausgebildet ist, dass er mit Ausnahme von Öffnungen nach Seitenflächen des Stapels hin eng an den

15 Rändern der Membranrahmen zweier benachbarter Membranzellen anliegt, und dass die Außenseiten aller Membranrahmen und Zufuhrrahmen unter Aussparung der Öffnungen gasdicht miteinander verschweißt oder verlötet sind.

20

Das Verfahren zur Herstellung des Membranmoduls ist in Anspruch 14 angegeben.

25

Indem sich die zwei Membranrahmen jeder Membranzelle an den erhabenen Rändern berühren, entfällt der sonst notwendige zusätzliche Rahmen für die luftdurchlässige Abstandshaltschicht zwischen den Membranen der Membranzelle, durch die das Permeatgas abgeleitet wird. Die Dickendifferenz wird durch einen etwas höheren Zufuhrrahmen ausgeglichen, und aufgrund der größeren Höhe des Zufuhrrahmens können leicht

30 Strukturen zur Formanpassung an die Membranrahmen sowie Öffnungen zur seitlichen Zu- und Ableitung der Reformat- und Raffinatgase darin ausgebildet werden.

35

Die erhabenen Ränder in den Membranrahmen haben eine gewisse Breite, damit sie flächig aufeinander liegen, und die Zufuhr-  
rahmen sind am Rand schmaler als die erhabenen Ränder in den  
5 Membranrahmen und mit passenden Auskehlungen versehen, dass  
sie sich von hinten genau in die erhabenen Ränder einfügen.

Die Membranrahmen können einfach durch Stanzen beziehungs-  
weise Prägen von Flachmaterial wie zum Beispiel Blech  
10 hergestellt werden, und die Zufuhrrahmen können spanend oder  
spanlos geformt werden.

Nachdem alle Rahmen eines Stapels aufeinander gelegt worden  
sind, wofür keine übermäßige Genauigkeit nötig ist, wird der  
15 Stapel einfach durch Verschweißen oder Verlöten der Außen-  
seiten verbunden und gasdicht gemacht, wobei die Öffnungen  
für Zu- und Ableitung der Prozessgase offen gehalten werden.  
Zusammengehörende Öffnungen liegen dann übereinander und kön-  
nen auf einfache Weise mit einem passenden Zu- oder Ablei-  
20 tungskanal verbunden werden. Die Herstellung ist besonders  
einfach, wenn alle Rahmen aus Metall bestehen, da sie dann  
sowohl untereinander als auch mit den Zu- und Ableitungen  
durch Schweißen verbunden werden können.

25 Im gleichen Arbeitsgang wie zur Herstellung der erhabenen  
Ränder können außerdem Strukturen in die Membranrahmen ge-  
prägt werden, die das Reformatgas gleichmäßig auf den Zufuhr-  
raum verteilen, vorzugsweise Stege, die auf die Reformatgas-  
Öffnung im Zufuhrrahmen ausgerichtet sind und die sich insbe-  
30 sondere in einer radialen Verteilung von der Reformatgas-  
Öffnung in Richtung auf eine Membrankante erstrecken.

Ein wesentlicher Vorteil des erfindungsgemäßen Membranmoduls  
ist, dass man mit nur wenigen verschiedenen Bauteilen  
35 auskommt, die einfach gestanzt bzw. geprägt werden können.  
Querschnitte, die den Strömungswiderstand und damit den Gas-  
fluss bestimmen, ergeben sich dann durch Prägen, welches

leicht mit hoher Genauigkeit erfolgen kann, so dass die einzelnen Teilströme durch die Membranzellen praktisch gleich sind und somit ein hoher Gesamtwirkungsgrad erreicht wird. Das gesamte Membranmodul kann geschweißt werden, so dass  
5 keine Leckströme von Kohlenmonoxid in das Permeatgas auftreten können, was durch Dichtungen nicht immer gewährleistet werden kann. Für die Zu- und Ableitung der Reformat-, Raffinat- und Permeatgase benötigt man jeweils nur ein zusätzliches Bauteil. Die Membranen können in rechteckiger Form ver-  
10 wendet werden, so dass der Membranverschnitt klein gehalten werden kann, und sie müssen nicht zur Permeatgasdurchführung gelocht werden. Durch die parallele Führung der Reformat- bzw. Raffinatgase sind keine Strukturen zur Gasumlenkung von Membranzelle zu Membranzelle nötig, wie sie bei serieller  
15 Strömungsführung erforderlich sind, so dass die Abmessungen des Membranmoduls klein gehalten werden können.

Weitere Merkmale und Vorteile der Erfindung ergeben sich aus den Unteransprüchen und aus der folgenden Beschreibung eines  
20 Ausführungsbeispiels anhand der Zeichnung. Darin zeigen:

Fig. 1 eine Prinzipskizze eines Membranmoduls mit einer Vielzahl von parallel angeströmten Membranen,

25 Fig. 2 eine Perspektivansicht eines Membranrahmens,

Fig. 3 eine Perspektivansicht eines Zufuhrrahmens,

Fig. 4 eine Perspektivansicht einer Membranzelle, und

30

Fig. 5 eine perspektivische Explosionsansicht eines Teils eines Membranmoduls einschließlich einer von zwei Endplatten.

Wie in Fig. 1 gezeigt, besteht ein Membranmodul aus einer  
35 Vielzahl von übereinander angeordneten ebenen Membranzellen 2, die jeweils zwei wasserstoffselektive ebene Membranen 4

enthalten, zwischen denen eine luftdurchlässige Abstandshalteschicht 6 liegt.

Die Membranen 4 sind bevorzugt Metallfolien aus Palladium, Palladiumlegierungen oder refraktären Metallen wie Vanadium, Niob und Tantal und deren Legierungen. Sie gewährleisten eine nahezu unendliche Selektivität für Wasserstoff und somit eine zur Versorgung von Brennstoffzellen ausreichende Reinheit des Permeatgases. Alternativ können Verbundmembranen verwendet werden, zum Beispiel wasserstoffselektive Membranen auf einer porösen Trägerstruktur, die zum Beispiel aus Keramik oder porösem Edelstahl bestehen kann.

Je zwei Membranzellen 2 sind durch Zufuhrräume 8 voneinander getrennt, in die von einer Seite des Stapels Membranzellen 2 her unter Druck stehendes wasserstoffhaltiges Reformatgas 10 eingespeist wird, das in einem vorgeschalteten Reformierungsprozess zum Beispiel aus Methanol, Benzin oder Diesel gewonnen wird.

Ein Teil des im Reformatgas 10 enthaltenen Wasserstoffs diffundiert durch die Membranen 4 in die luftdurchlässige Abstandshalteschicht 6, wenn das wasserstoffhaltige Reformatgas an den Membranen 4 entlang strömt. Das heißt, der Wasserstoffgehalt bzw. der Wasserstoff-Partialdruck vermindert sich, während das Gas an den Membranen 4 entlang strömt und als wasserstoffabgereichertes Raffinatgas 12 an der dem Reformatgas-Einlass entgegengesetzten Seite aus dem Stapel Membranzellen 2 austritt, wie in Fig. 1 mit Pfeilen angezeigt.

Das durch die Membranen 4 diffundierte Permeatgas ist hochreiner Wasserstoff, der in der Abstandshalteschicht 6 gesammelt und seitlich abgeleitet wird (in Fig. 1 nicht gezeigt).

Am oberen und unteren Ende des Stapels Membranzellen 2 befinden sich angrenzend an den letzten Zufuhrraum 8 jeweils eine einzelne wasserstoffselektive Membran 4, eine luftdurchlässige



sige Abstandshalteschicht 6 und eine Endplatte 14 zur Abdichtung und zur Abstützung der letzten Schichten gegen den inneren Gasdruck des Membranmoduls. In Fig. 1 ist nur eine obere Endplatte 14 gezeigt.

5

Es hat sich gezeigt, dass die theoretisch maximal mögliche Permeationsrate nicht nur bei Membranmodulen mit serieller Anströmung erreicht wird, wie sie zum Beispiel in der US 5 498 278 und der US 5 645 626 beschrieben sind, sondern auch bei paralleler Anströmung wie in Fig. 1, sofern die mit Pfeilen angezeigten einzelnen Teilströme durch die Zufuhr-  
räume 8 gleich groß sind. Ferner wurde durch Simulation für zehn Teilströme festgestellt, dass selbst bei unterschiedlichen Teilströmen mit Abweichungen von 10 % voneinander die Permeationsrate unter praxisnahen Simulationsvoraussetzungen nur um maximal 3 % geringer ist als die theoretisch maximal mögliche Permeationsleistung. Andererseits kann bei geeigneter Ausführung der Querschnitte der Reformatgaszuleitung und der Raffinatgasableitung auch bei paralleler Anströmung gewährleistet werden, dass die Teilströme nahezu gleich sind (da der Strömungswiderstand in allen Strömungskanälen gleich groß ist).

Ein Membranmodul, bei dem nahezu gleiche Teilströme gewährleistet werden können und das dennoch mit wenig Aufwand hergestellt werden kann, wird nun anhand von Figuren 2 bis 5 im Detail beschrieben, wobei funktionsgleiche Bestandteile wie in Fig. 1 die gleichen Bezugszeichen haben.

Jede Membranzelle 2 enthält zwei flächige Membranrahmen 16, von denen einer in Fig. 2 gezeigt ist, die jeweils eine Membran 4 tragen. Weiterhin enthält jede Membranzelle 2 eine luftdurchlässige Abstandshalteschicht 6 zwischen den Membranen 4 sowie einen ringförmigen Zufuhrrahmen 18 (Fig. 3), der die gleichen äußeren Abmessungen wie die Membranrahmen 16 hat, wobei die äußeren Abmessungen hier durch ein Rechteck

mit gerundeten Ecken gebildet werden. Eine einzelne Membranzelle 2 im zusammengebauten Zustand ist in Fig. 4 gezeigt.

Wie in Fig. 2 gezeigt, ist jeder Membranrahmen 16 ein im wesentlichen ebenes, aus Edelstahlblech gestanztes Bauteil in Form eines Rechtecks mit gerundeten Ecken, das in der Mitte eine rechteckige Öffnung 20 für die Membran 4 hat und in das ein erhabener Rand 22 geprägt ist. Der erhabene Rand 22 hat eine gewisse Breite, auf der er eben ist, und erstreckt sich parallel zu der Ebene des inneren Bereichs des Membranrahmens 16 in einem kleinen Abstand davon versetzt, und zwar in Fig. 2 nach unten. In einem Abschnitt in der Mitte einer Schmalseite des Membranrahmens 16 ist das Blech nicht zu dem erhabenen Rand 22 geprägt, sondern erstreckt sich in der gleichen Ebene wie der innere Bereich des Membranrahmens 16, so dass der erhabene Rand 22 in diesem Abschnitt eine Auskehlung 24 enthält, durch die das Permeatgas 26 abgeleitet wird.

Auf der in Fig. 2 oben liegenden Oberfläche des Membranrahmens 16 stehen vier Stege 28 hervor, die sich ungefähr von der Mitte der Schmalseite des Membranrahmens 16, die der Schmalseite mit der Auskehlung 24 entgegengesetzt ist, sternförmig bis nahe an die rechteckige Öffnung 20 im Membranrahmen 16 erstrecken. Die Stege 28 bilden zusammen mit den Stegen 28 eines angrenzenden Membranrahmens 16 eine Verteilerstruktur, die das Reformatgas 10, das an dieser Seite des Membranrahmens 16 zugeführt wird, gleichmäßig auf die gesamte Breite der Membran 4 verteilt.

Die Stege 28 können im gleichen Arbeitsgang in das Blech des Membranrahmens 16 geprägt werden, in dem der erhabene Rand 22 geprägt wird, und das Prägen kann im gleichen Arbeitsgang wie das Ausstanzen des Membranrahmens 16 aus Blechmaterial erfolgen.

Der in Fig. 3 gezeigte Zufuhrrahmen 18 hat die Form eines ringförmig geschlossenen Streifens, der einen Zufuhrraum 8

(Fig. 1) für Reformatgas 10 nach den Seiten des Membranmoduls hin abschließt. Der ringförmige Zufuhrrahmen 18 ist etwas höher als ein Membranrahmen 16 insgesamt dick ist, schmaler als die erhabenen Ränder 22 in den Membranrahmen 16 und mit Auskehlungen 30 versehen, die den Auskehlungen 24 in den Membranrahmen 16 entsprechen, so dass er sich genau in die erhabenen Ränder 22 schmiegt, wenn er mit den Membranrahmen 16 zweier benachbarter Membranzellen 4 zusammengefügt wird. Der Zufuhrrahmen 18 kann zum Beispiel durch Prägen oder durch Fräsen, Biegen und Zusammenschweißen von Strangmaterial hergestellt werden.

Der Zustand, in dem ein Zufuhrrahmen 18. (in einer gegenüber der Lage von Fig. 3 um seine Längsachse gewendeten Lage) auf dem Membranrahmen 16 aufliegt, ist in Fig. 4 gezeigt. Auf die entgegengesetzte Seite des Membranrahmens 16 wird ein weiterer Membranrahmen 16 aufgelegt (in einer gegenüber der Lage von Fig. 2 um seine Längsachse gewendeten Lage). Wie man sieht, bilden die Auskehlungen 24 in den beiden Membranrahmen 16 einen Permeatauslasskanal zur Ableitung des Permeatgases 26.

Wie in Fig. 3 zu sehen ist, enthält der Zufuhrrahmen 18 außerdem Auskehlungen 32 und 34, die zusammen mit dem daran angrenzenden Membranrahmen 16 einen Einlasskanal für das Reformatgas 10 und einen Auslasskanal für das Raffinatgas 12 bilden, die in Fig. 4 zu erkennen sind.

Bevor die Membranrahmen 16 wie in Fig. 4 gezeigt zusammengefügt werden, werden die Membranen 4, die ein wenig größer als die rechteckige Öffnung 20 in jedem Membranrahmen 16 sind, gasdicht auf die Ränder der Öffnungen 20 geschweißt, vorzugsweise auf der Seite der Abstandshalteschicht 6, damit die Membran 4 direkt auf der Abstandshalteschicht 6 aufliegt. Die Membranen 4 können mittels verschiedener Schweißverfahren wie zum Beispiel Elektronenstrahlschweißen, Laserstrahlschweißen, Ultraschallschweißen oder Widerstands-Rollnahtschweißen oder

mittels Lötverfahren mit den jeweiligen Membranrahmen 16 verbunden werden. Zwischen je zwei Membranrahmen 16 wird eine Abstandshalteschicht 6 gelegt, die doppelt so dick ist, wie der erhabene Rand 22 des Membranrahmens 16 vom inneren Bereich des Membranrahmens 16 versetzt ist.

Die Abstandshalteschicht 6 besteht zum Beispiel aus einem Edelstahlnetz oder -vlies oder aus einer Mehrschichtstruktur und hat die Funktion, die Membranen 4 im Betrieb gegen die transmembrane Druckdifferenz zwischen Reformatgas 10 und Permeatgas 26 abzustützen und das durch die Membranen 4 diffundierte Permeatgas 26 parallel zur Membranoberfläche in Richtung auf den Permeatauslasskanal abzuleiten.

Zur Herstellung eines vollständigen Membranmoduls werden eine Vielzahl der in Fig. 4 gezeigten Membranzellen 2 aufeinander gestapelt. Am oberen und am unteren Ende des Stapels Membranzellen 2 werden jeweils ein einzelner Membranrahmen 16 mit eingebauter Membran 4 und eine Abstandshalteschicht 6 angeordnet. Zuletzt werden stabile Endplatten 14 aufgesetzt, die das Membranmodul gegen den inneren Gasdruck zusammenhalten.

Diese Art von Zellenabschlusskonstruktion, die schon anhand von Fig. 1 allgemein beschrieben wurde, ist in Fig. 5 detaillierter zu erkennen, die eine Explosionsansicht des obersten Teils des Membranmoduls einschließlich zweier Membranzellen 2 ist. Durch die Zellenabschlusskonstruktion mit einem einzelnen Membranrahmen 16 unter der Abstandshalteschicht 6 und der Endplatte 14 wird erreicht, dass Reformatgas-Teilströme, die den Endplatten 14 am nächsten durch das Membranmodul geführt werden, die gleiche Membranfläche überströmen wie alle anderen Teilströme.

An dem zusammengesetzten Stapel Membranzellen 2 werden die Membranrahmen 16, die Zufuhrrahmen 18 und die Endplatten 14 miteinander verschweißt, wodurch ein kompakter Stapel ent-

steht, der bis auf die Ein- und Auslasskanäle für das Reformatgas 10, das Raffinatgas 12 und das Permeatgas 26 gasdicht ist. Die Ein- und Auslasskanäle für das Reformatgas 10, das Raffinatgas 12 und das Permeatgas 26 liegen jeweils genau  
5 übereinander und bilden jeweils ein Rechteck, auf das ein passendes Zu- bzw. Ableitungsrohr oder dergleichen geschweißt wird.

DaimlerChrysler AG

Quermann

31.07.02

Patentansprüche

5 1. Membranmodul zur Wasserstoffabtrennung, mit einer Vielzahl von ebenen Membranzellen, die jeweils zwei wasserstoffselektive ebene Membranen, die jeweils von einem flächigen Membranrahmen umgeben sind, eine zwischen den Membranen angeordnete luftdurchlässige Abstandshalteschicht zur Ableitung von

10 Permeatgas und einen Zufuhrrahmen enthalten, der einen Zufuhrraum für Reformatgas umgibt, wobei alle Membranrahmen und Zufuhrrahmen gleiche äußere Abmessungen haben und einen Stapel mit ebenen Seitenflächen bilden,

15 d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die zwei Membranrahmen (16) jeder Membranzelle (2) aufeinander zu gerichtete erhabene Ränder (22) haben, mit denen sie sich mit Ausnahme mindestens einer Öffnung (24) nach einer Seitenfläche des Stapels hin berühren, dass der Zufuhrrahmen (18) so ausgebildet ist, dass er mit Ausnahme von Öffnungen (32, 34) nach Seitenflächen des Stapels hin eng an den Rändern der Membranrahmen (16) zweier benachbarter Membranzellen (2) anliegt, und dass die Außenseiten aller Membranrahmen (16) und Zufuhrrahmen (18) unter Aussparung der Öffnungen (24, 32, 34) gasdicht miteinander verschweißt oder verlötet sind.

25

2. Membranmodul nach Anspruch 1,  
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die Membranrahmen (16) Stege (28) enthalten, die auf eine der Öffnungen (32) im Zufuhrrahmen (18) ausgerichtet sind.

30

3. Membranmodul nach Anspruch 2,

d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass sich die Stege (28) in einer radialen Verteilung von der Öffnung (32) im Zufuhr-rahmen (18) in Richtung auf eine Membrankante erstrecken.

4. Membranmodul nach einem der vorhergehenden Ansprüche,

d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die Membranrahmen (16) aus einem flächigen Material bestehen, in das die erhabenen Ränder (22) und die mindestens eine Öffnung (24) und/oder die Stege (28) geprägt sind.

5. Membranmodul nach einem der vorhergehenden Ansprüche,

d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die Membranrahmen (16) aus geprägtem Blech bestehen.

6. Membranmodul nach Anspruch 5,

d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die zwei Membranrahmen (16) jeder Membranzelle (2) an ihren erhabenen Rändern (22) miteinander verschweißt sind.

7. Membranmodul nach einem der vorhergehenden Ansprüche,

d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die Zufuhr-rahmen (18) ringförmig geschlossene Streifen sind, die schmaler als die erhabenen Ränder (22) der Membranrahmen (16) sind.

8. Membranmodul nach Anspruch 7,

d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die Öffnungen (32, 34) in den Zufuhr-rahmen (18) Auskehlungen in den Streifen sind.

9. Membranmodul nach einem der vorhergehenden Ansprüche,

d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die Zufuhr-rahmen (18) aus Metall bestehen.

10. Membranmodul nach Anspruch 6 und Anspruch 9,

d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die Membranrahmen (16) und die Zufuhrrahmen (18) miteinander verschweißt sind.

5 11. Membranmodul nach Anspruch 10,  
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass an die  
Seitenflächen des Stapels Kanäle geschweißt sind, die jeweils  
einander entsprechende Öffnungen (24) in den Membranrahmen  
10 (16) beziehungsweise Öffnungen (32, 34) in den Zufuhrrahmen  
(18) miteinander und mit der Außenseite verbinden.

12. Membranmodul nach einem der vorhergehenden Ansprüche,  
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass auf dem  
obersten und dem untersten Zufuhrraum (8) des Stapels Mem-  
15 branzellen (2) jeweils in dieser Reihenfolge ein Membranrah-  
men (16) mit eingebauter Membran (4), eine Abstandshal-  
teschicht (6) und eine Endplatte (14) angeordnet sind.

13. Membranmodul nach einem der vorhergehenden Ansprüche,  
20 d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die äußeren  
Abmessungen der Membranrahmen (16), der Zufuhrrahmen (18) be-  
ziehungsweise der Endplatten (14) durch ein Rechteck mit ge-  
rundeten Ecken gebildet werden.

25 14. Verfahren zur Herstellung eines Membranmoduls zur Wasser-  
stoffabtrennung, bei dem eine Vielzahl von ebenen Membranzel-  
len aufeinander gestapelt und miteinander verbunden werden,  
wobei jede Membranzelle aus zwei wasserstoffselektiven ebenen  
Membranen, die jeweils von einem flächigen Membranrahmen um-  
30 geben sind, einer zwischen den Membranen angeordneten luft-  
durchlässigen Abstandshalteschicht zur Ableitung von Permeat-  
gas und einem Zufuhrrahmen aufgebaut wird, der einen Zufuhr-  
raum für Reformatgas umgibt, wobei alle Membranrahmen und  
Zufuhrrahmen gleiche äußere Abmessungen haben und zu einen  
35 Stapel mit ebenen Seitenflächen zusammengesetzt werden,  
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die zwei  
Membranrahmen (16) jeder Membranzelle (2) mit aufeinander zu



gerichteten erhabenen Rändern (22) ausgebildet und mit den Rändern aufeinander gelegt werden, wobei die erhabenen Ränder (22) so ausgebildet werden, dass mindestens eine Öffnung (24) nach einer Seitenfläche des Stapels hin frei bleibt, dass der Zufuhrrahmen (18) so ausgebildet wird, dass er mit Ausnahme von Öffnungen (32, 34) nach Seitenflächen des Stapels hin eng auf die Ränder (22) der Membranrahmen (16) zweier benachbarter Membranzellen (2) passt, und dass die Außenseiten aller Membranrahmen (16) und Zufuhrrahmen (18) unter Aussparung der Öffnungen (24, 32, 34) gasdicht miteinander verschweißt oder verlötet werden.

15 15. Verfahren nach Anspruch 14,  
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die Membranrahmen (16) mit Stegen (28) versehen werden, die auf eine der Öffnungen (32) im Zufuhrrahmen (18) ausgerichtet sind.

20 16. Verfahren nach Anspruch 15,  
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die Stege (28) so ausgebildet werden, dass sie sich in einer radialen Verteilung von der Öffnung (32) im Zufuhrrahmen (18) in Richtung auf eine Membrankante erstrecken.

25 17. Verfahren nach einem der Ansprüche 14 bis 16,  
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die Membranrahmen (16) aus einem flächigen Material hergestellt werden, in das die erhabenen Ränder (22) und die mindestens eine Öffnung (24) und/oder die Stege (28) geprägt werden.

30 18. Verfahren nach einem der Ansprüche 14 bis 17,  
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die Membranrahmen (16) aus Blech geprägt werden.

35 19. Verfahren nach Anspruch 18,  
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die zwei Membranrahmen (16) jeder Membranzelle (2) an ihren erhabenen Rändern (22) miteinander verschweißt werden.

20. Verfahren nach einem der Ansprüche 14 bis 19,  
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die Zufuhr-  
rahmen (18) ringförmig geschlossene Streifen sind, die  
5 schmaler als die erhabenen Ränder (22) der Membranrahmen (16)  
sind.

21. Verfahren nach Anspruch 20,  
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die Öffnun-  
10 gen (32, 34) in den Zufuhrrahmen (18) durch Auskehlungen in  
den Streifen gebildet werden.

22. Verfahren nach einem der Ansprüche 14 bis 21,  
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die  
15 Zufuhrrahmen (18) aus Metall hergestellt werden.

23. Verfahren nach Anspruch 18 und Anspruch 22,  
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die Mem-  
branrahmen (16) und die Zufuhrrahmen (18) miteinander  
20 verschweißt werden.

24. Verfahren nach Anspruch 24,  
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass an die  
Seitenflächen des Stapels Kanäle geschweißt werden, die  
25 jeweils einander entsprechende Öffnungen (24) in den Membran-  
rahmen (16) beziehungsweise Öffnungen (32, 34) in den Zufuhr-  
rahmen (18) miteinander und mit der Außenseite verbinden.

25. Verfahren nach einem der Ansprüche 14 bis 24,  
30 d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass auf dem  
obersten und dem untersten Zufuhrraum (8) des Stapels Mem-  
branzellen (2) jeweils in dieser Reihenfolge ein Membranrah-  
men (16) mit eingebauter Membran (4), eine Abstandshal-  
teschicht (6) und eine Endplatte (14) angeordnet werden.

35

26. Verfahren nach einem der Ansprüche 14 bis 25,

d a d u r c h   g e k e n n z e i c h n e t, dass die  
äußeren Abmessungen der Membranrahmen (16), der Zufuhrrahmen  
(18) beziehungsweise der Endplatten (14) durch ein Rechteck  
mit gerundeten Ecken gebildet werden.

FIG. 1

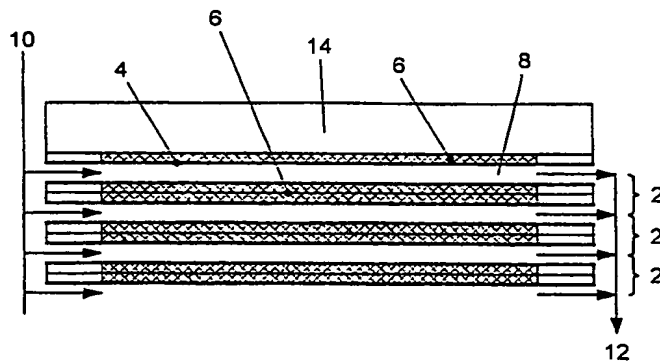


FIG. 2

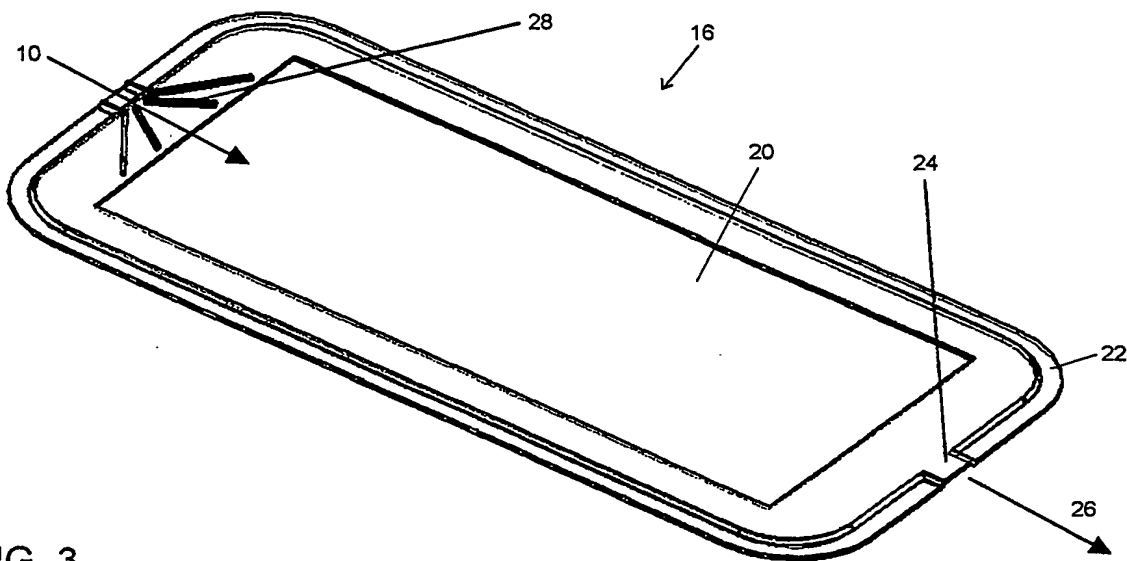
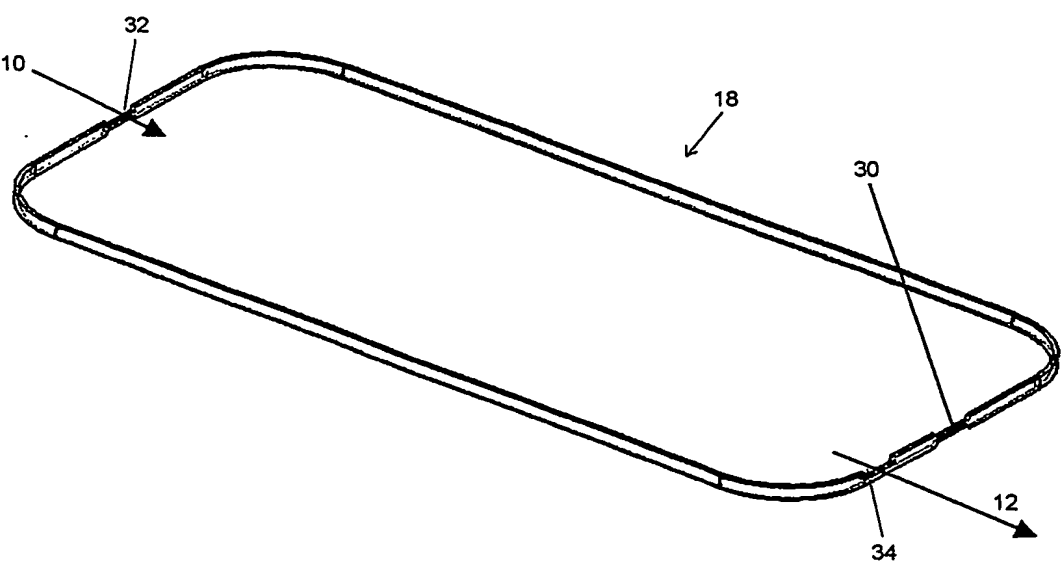


FIG. 3



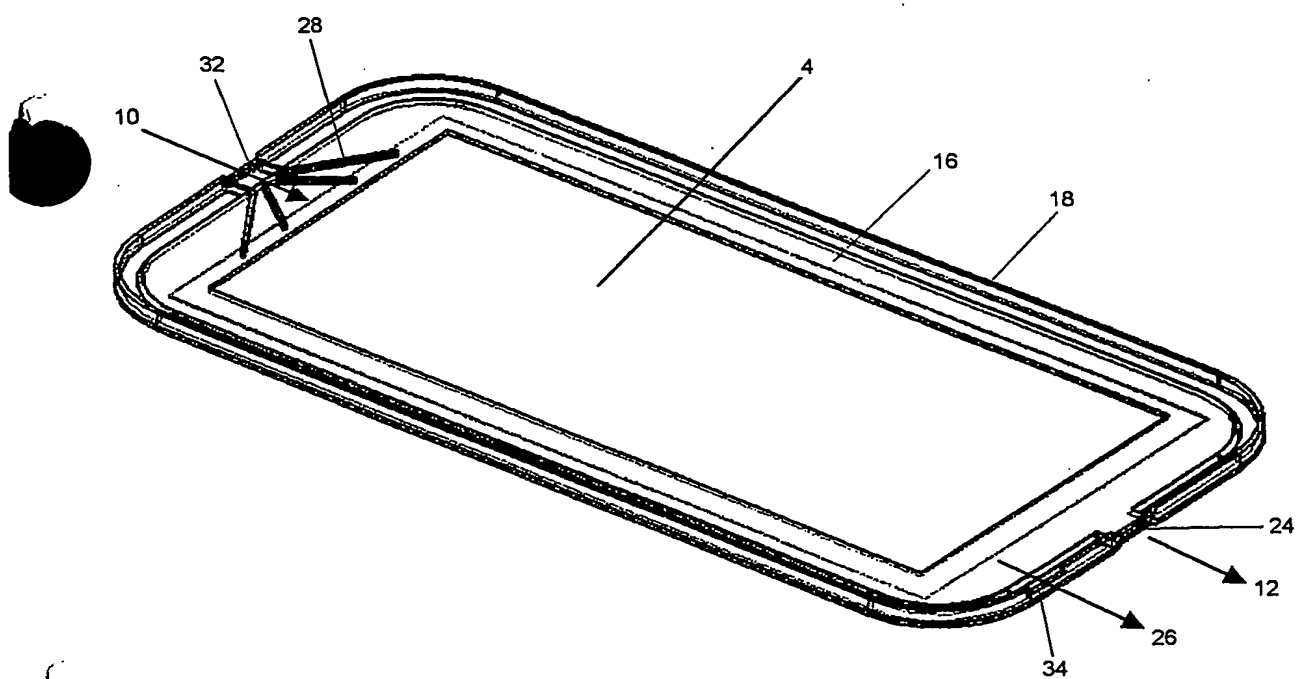
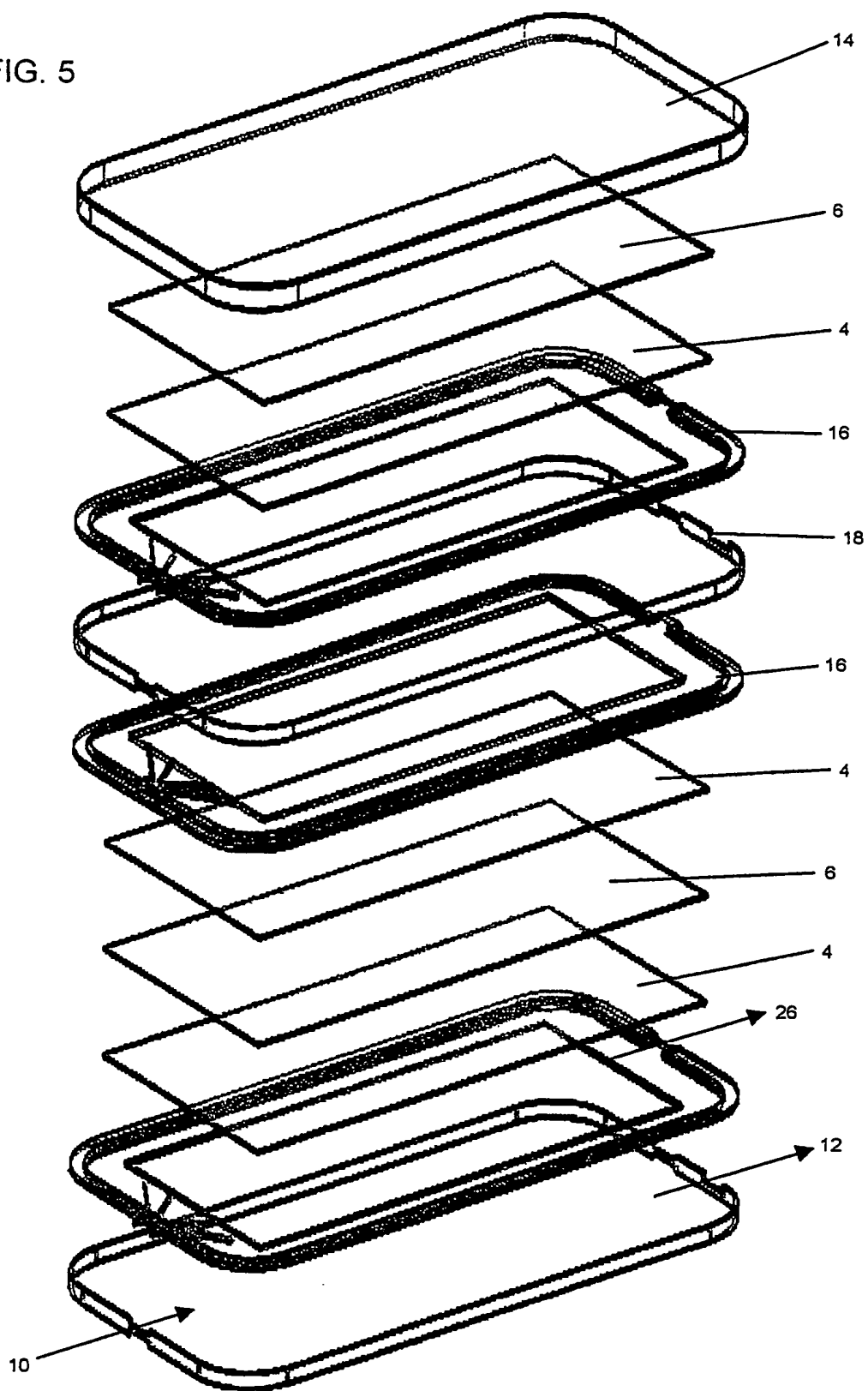


FIG. 5



DaimlerChrysler AG

Quermann

31.07.02

Zusammenfassung

5 Die Erfindung betrifft ein Membranmodul zur Wasserstoff-  
abtrennung und ein Verfahren zu dessen Herstellung. Das Mem-  
branmodul ist für parallele Anströmung ausgelegt und enthält  
eine Vielzahl von ebenen Membranzellen, die jeweils zwei  
wasserstoffselektive ebene Membranen (4), die jeweils von  
10 einem flächigen Membranrahmen (16) umgeben sind, eine zwis-  
chen den Membranen angeordnete luftdurchlässige Abstandshal-  
teschicht zur Ableitung von Permeatgas und einen Zufuhrrahmen  
(18) enthalten, der einen Zufuhrraum für Reformatgas (10) um-  
gibt, wobei alle Membranrahmen und Zufuhrrahmen gleiche  
15 äußere Abmessungen haben und einen Stapel mit ebenen Seiten-  
flächen bilden. Gemäß der Erfindung haben die zwei Membran-  
rahmen (16) jeder Membranzelle (2) aufeinander zu gerichtete  
erhabene Ränder, mit denen sie sich mit Ausnahme mindestens  
einer Öffnung nach einer Seitenfläche des Stapels hin  
berühren, und ist der Zufuhrrahmen (18) so ausgebildet, dass  
er mit Ausnahme von Öffnungen (32, 34) nach Seitenflächen des  
Stapels hin eng an den Rändern der Membranrahmen (16) zweier  
benachbarter Membranzellen (2) anliegt. Die Außenseiten aller  
Membranrahmen (16) und Zufuhrrahmen (18) sind unter  
25 Aussparung der Öffnungen (24, 32, 34) gasdicht miteinander  
verschweißt oder verlötet.

(Fig. 4)

FIG. 4

